

# REINFORCED FIBER BASE MATERIAL FOR COMPOSITE MATERIAL AND MANUFACTURE THEREOF

Publication number: JP11020059

Publication date: 1999-01-26

Inventor: FUJII MIKIYA; KASAI ARATA

Applicant: NITTO BOSEKI CO LTD

Classification:

- international: **B32B5/00; B29C70/10; B32B5/08; B32B5/00; B29C70/10; B32B5/08; (IPC1-7): B32B5/08; B29C70/10; B32B5/00**

- european:

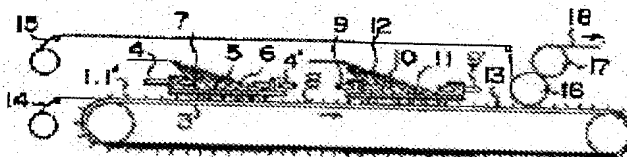
Application number: JP19970187230 19970630

Priority number(s): JP19970187230 19970630

Report a data error here

## Abstract of JP11020059

**PROBLEM TO BE SOLVED:** To achieve superior formability during molding, and make the resin impregnation of molded articles excellent, and thus lessen the directional property in strength by composing each material consisting of a warp material, a weft material, and bi-directional oblique materials oppositely crossing each other with continuous reinforced fibers sheathed by thermoplastic resin. **SOLUTION:** A number of resin-coated reinforcing fiber bundles 7 is fed on a conveyor 3 via a guide 6. Oblique bodies 8 comprising a multiplicity of pieces of coated fiber bundles are formed between the left and right pin rows, and superimposing two oblique bodies forms an integrated body 13 of weft materials and oblique materials crossing in two directions. Then, warp materials 14, 15 consisting of thermoplastic resin-coated fiber bundles are supplied in a manner holding the integrated body 13 from the upper side and lower side, thereby forming a four axially integrated cloth 18 in which coated fiber bundles are disposed in the warp direction, weft direction, and two oblique directions being intersected to each other. The integrated body 13 is heated by a heat roller, and compressing conditions by press rollers are preferable to be of the order of causing thermal melt at intersection points.



Data supplied from the [esp@cenet](mailto:esp@cenet) database - Worldwide

4/6

(19) 日本国特許庁 (J P)

(12) 公開特許公報 (A)

(11) 特許出願公開番号

特開平11-20059

(43) 公開日 平成11年(1999) 1月26日

(51) Int.Cl. <sup>6</sup>	識別記号	F I	
B 3 2 B 5/08		B 3 2 B 5/08	
B 2 9 C 70/10		5/00	A
B 3 2 B 5/00		B 2 9 C 67/14	X

審査請求 未請求 請求項の数 4 F D (全 5 頁)

(21) 出願番号	特願平9-187230	(71) 出願人	000003975 日東紡績株式会社 福島県福島市郷野目字東1番地
(22) 出願日	平成9年(1997) 6月30日	(72) 発明者	藤井 幹也 福島県福島市鎌田字月ノ輪山5の80
		(72) 発明者	河西 新 福島県福島市蓬萊町3-2-17

(54) 【発明の名称】 複合材用強化繊維基材及びその製造方法

(57) 【要約】

【課題】 製造が容易で、成形時の取扱い性や賦形性が良好で、且つ、成形品にした場合、樹脂の含浸が良好で強化繊維の含有率を高めることができ、成形品の強度の方向性が少なく、機械的特性の優れた成形品を可能とする繊維強化熱可塑性樹脂複合材の成形材料の提供を目的とする。

【解決手段】 経材と緯材及び互いに逆方向に交差する2方向からなる複合材用強化繊維基材において、前記各材が熱可塑性樹脂により被覆された連続強化繊維からなり、且つ、各材の交点において各材が融着されている複合材用強化繊維基材。

FPD5-0113 -00100-XX
05.7.19
SEARCH REPORT

## 【特許請求の範囲】

【請求項1】 経材と緯材および互いに逆方向に交差する2方向の斜交材からなる複合材用強化繊維基材において、前記各材が熱可塑性樹脂により被覆された連続強化繊維からなり、かつ、各材の交点において各材が融着されていることを特徴とする複合材用強化繊維基材。

【請求項2】 請求項1における緯材と斜交材が経材の間に挟まれていることを特徴とする複合材用強化繊維基材。

【請求項3】 経材と緯材および互いに逆方向に交差する2方向の斜交材からなる複合材用強化繊維基材の製造において、前記各材に熱可塑性樹脂により被覆された強化繊維を用い、加熱プレスすることにより前記各材の交点を熱融着しシート状とすることを特徴とする複合材用強化繊維基材の製造方法。

【請求項4】 成形材料として請求項1の複合材用強化繊維基材を用いたことを特徴とする繊維強化熱可塑性樹脂複合材。

## 【発明の詳細な説明】

## 【0001】

【発明の属する技術分野】本発明は、繊維強化熱可塑性樹脂複合材を製造するのに用いられる成形材料に関し、特に機械的特性の方向性の少ない複合材を成形するのに好適な成形材料に関する。

## 【0002】

【従来の技術】熱可塑性樹脂を繊維のマット状物に含浸一体化してなる組成物がスタンパブルシートとして知られている。スタンパブルシートを用いる成形（スタンピング成形）は、加熱溶融したシートを加熱された一對の型の間に供給し加圧して賦形することによりなされる。スタンピング成形は、一般に成形に要する時間が短いので生産性が高く、成形品は金属と異なり錆びず、更に比強度と比弾性率が高いことから軽量化が可能であり、自動車産業や一般産業分野に広く用いられている。従来、スタンパブルシートとして知られているのは、ニードルパンチングした長繊維マットやチョップドストランドマットに樹脂を含浸したものである。これらのスタンパブルシートの成形物は物性上の方向性が少なく、機械的物性は均一であることが特徴であるが、強化繊維の含有率を上げることができず、必ずしも満足できる機械的特性ではない。強化繊維複合材には用途によっては非常に大きい曲げ強度と剛性が要求されるような部材もある。例えば梁のような部材では、従来の均質なスタンパブルシートを用いる場合は、設計上必要な強度を確保するため、全体として肉厚となり軽量化が達成しにくい。

【0003】スタンパブルシートの機械的特性が不十分であるということに対し、強化繊維繊維と熱可塑性樹脂フィルムとを積層し加熱プレスすることにより成形体を製造することも行われている。織物の場合は強化繊維の含有率を上げることができ、機械的特性を向上させるこ

とができる。しかし織物の場合は、強化繊維からなる経糸、緯糸が交互に上下に交差した形で織物を構成しているため、糸の交点における溶融熱可塑性樹脂の含浸が不十分になりやすい。熱可塑性樹脂の場合は溶融時の粘度が熱硬化性樹脂等と比較して高いため、どうしても含浸不良が発生しやすい。更に、織物の場合は、経糸、緯糸が織成されているため糸の自由度が制限され、立体的な形状を有する成形体の場合は、局部的にしわがよったり、折れ重なったりすることがあり賦形性の点で問題がある。また、織物の場合は、通常経糸と緯糸で構成されているため、経糸方向、緯糸方向については成形体に強度を付与することができるが斜め方向については、十分な強度を付与することができない。

【0004】一方熱可塑性樹脂を繊維状にしたり、粉体にしたりして強化繊維と織物にしたり、強化繊維繊維と混合したフレキシブルな成形材料も開発され、市販されているが、いずれも製織工程を経るため生産性が上がらず、コストが高くなるという欠点がある。これらの問題に対処する方法として、繊維状物を一方向に引き揃えた状態で樹脂を含浸して成形し、設計上必要な量を必要部分に用いることが考えられ、これに関して幾つかの提案がなされている。（特開昭62-13906号、特開昭62-19429号、特開昭62-11735号等）しかしながら一方向に引き揃えられた繊維に樹脂を含浸して用いる場合には数々の問題点がある。そのひとつは、一方向に引き揃えられた繊維のみを用いて樹脂を含浸して一体化する工程においては、繊維の配列を乱さないで樹脂を含浸させるためには、繊維方向に大きい張力を与えて加熱加圧するなどの手段が必要である。

【0005】また、樹脂として熱硬化性樹脂であるエポキシ樹脂や不飽和ポリエステル樹脂を用いる場合には、含浸した後ある程度粘度を上昇させた、即ちBステージ化や熟成とよばれる工程によって、一体化した材料を繊維配列を乱さずに取扱えるようにする必要がある。樹脂として熱可塑性樹脂を用いる場合には、樹脂が含浸されて引き揃えられた繊維配列を成形前の加熱溶融によって乱れないように成型型へ供給することは困難であり、引き揃えられた繊維の相互を前もってゆるくつなぎ合わせておくなどの必要が生じる。また、別に一方向に引き揃えられた繊維とチョップドストランドマットを併用する例においては、互いに順次重ね合わせた層を有するものが公知であるが、これを用いた成形物の機械的物性は、引き揃えられた繊維方向において含有する繊維の量に相当する程度の引張り強度の向上が見られるにすぎない。

【0006】更に、一方向に引き揃えられた繊維を含有するスタンパブルシートからなる上下の層と、中間層として方向性のない繊維を含有するスタンパブルシートとを成形時に組み合わせる用いて機械的物性を向上させることも考えられるが、このような方法によれば厚みの少

ない成形物を得るには、非常に薄い一方方向性のスタンパ  
ブルシートが必要であり、その製造上の困難さとともに  
成形時に加熱溶融した状態で一方方向に引き揃えられた繊維を乱さないで、成形型内に供給することも難しく、更に成形時の重ね合わせ作業が繁雑で実用的でない。一方、繊維束をシート状にした形態として組布といわれるものがある。これは繊維束を積層し接着剤などで固定したもので、その積層方向により2軸組布、3軸組布、4軸組布などがある。2軸組布の場合は、経方向の繊維束と緯方向の繊維束が積層接着されて織物状を形成しているが、経方向の繊維束が緯方向の繊維束の上に積層されているだけのため、織物のように製織工程がいらず安価に製造することができ、紙やアルミはくの補強材として、また炭素繊維などの一方方向引き揃え材の支持体などとして用途を広げつつある。同様に、4軸組布の場合も経方向、緯方向及び互いに交差する斜め2方向の繊維束が積層接着されてシート状を形成している。4軸組布の製造方法に関しては、特公平3-80911号公報などに開示されている。

【0007】

【発明が解決しようとする課題】本発明の目的は、従来の成形材料に見られる上記欠点を改良し、その産業分野での応用範囲を広げようとするものであり、製造が容易で、成形時の取扱い性及び賦形性が良好で、且つ、成形品の樹脂の含浸が良好で、強化繊維の含有率を高めることができ、しかも強度の方向性が少なく、機械的特性の優れた成形品を可能とする成形材料を提供することである。

【0008】

【課題を解決するための手段】本発明者らは、経材と緯材および互いに逆方向に交差する2方向の斜交材からなる複合材用強化繊維基材において、前記各材が熱可塑性樹脂により被覆された連続強化繊維からなり、かつ、各材の交点において各材が融着されている複合材用強化繊維基材とすることにより前記課題の解決が可能であることを見出したものであり、また、前記緯材と斜交材が経材の間に挟まれている複合材用強化繊維基材とすることにより、更に良好に前記課題の解決が可能であることを見出したものである。また、経材と緯材および互いに逆方向に交差する2方向の斜交材からなる複合材用強化繊維基材の製造において、前記各材に熱可塑性樹脂により被覆された連続強化繊維を用い、加熱プレスすることにより前記各材の交点を熱融着し、4軸方向に各材が配置されたシート状とする複合材用強化繊維基材の製造方法により前記課題の解決を図ろうとするものである。更に、前記複合材用強化繊維基材を成形材料として用いて成形することにより前記課題の解決が図られた複合材の得られることを見出したものである。

【0009】

【発明の実施の形態】本発明の複合材用強化繊維基材を

構成する経材、緯材、斜交材は、炭素繊維、ガラス繊維、アルミナ繊維、アラミド繊維、ポリベンツオキサゾール繊維、金属繊維などの強化繊維を芯材として熱可塑性樹脂により被覆されたものである。使用される強化繊維のフィラメント径は2~30 $\mu$ mの範囲のものが適し、フィラメントの集束本数としては100~2000本の範囲のものが用いられる。強化繊維束の形態としては、単にフィラメントを引き揃えたロービング状のものから、よりのかかった糸の状態のものまでを含み、連続フィラメントであれば繊維束の形態については特に限定されない。しかし、溶融熱可塑性樹脂の含浸性を考慮すると、よりのかかっていないロービング状の繊維束が望ましい。また、強化繊維を被覆する熱可塑性樹脂としては、例えば、ポリアミド樹脂、ポリオレフィン樹脂、ポリエチレンテレフタレート樹脂、ポリブチレンテレフタレート樹脂、ポリアクリレート樹脂、ポリカーボネート樹脂、ポリアセタール樹脂、ポリフェニレンオキサ이드樹脂、ポリスルホン樹脂、ポリフェニレンサルファイド樹脂、ポリアリレート樹脂、ポリエーテルイミド樹脂、ポリエーテルエーテルケトン樹脂などを使用することができる。

【0010】強化繊維に熱可塑性樹脂を被覆する方法は、本発明の出願人が出願した特開平8-336879号によることができる。この被覆方法では、エクストルーダの先端に取付けられたダイス内に溶融樹脂を押出し、更にダイス端部よりチューブ状に吐出させる。一方、強化繊維束は、ダイスの通糸部を通り、チューブ状に押出される溶融樹脂にダイス外で接触し、繊維束の速度に合わせて溶融樹脂を延伸しながら被覆される。この方法によると、溶融熱可塑性樹脂が無圧状態で被覆されるため、繊維束中に殆ど樹脂が含浸しておらず、被覆繊維束が柔軟性を有し、後加工時の取扱い性が良い。熱可塑性樹脂被覆繊維束の樹脂含有率は30~70(wt)%である。以上の熱可塑性樹脂被覆強化繊維束を用いて本発明の複合材用強化繊維基材が得られる。

【0011】次に複合材用強化繊維基材の製法について図1および図2により説明する。図1および図2において、進行方向の左右に一定のピッチで繊維束を掛けるピン1、1'を配したピン列2、2'を有する循環コンベア3を経方向に進行せしめ、該コンベア3の上方に所定の角度 $\alpha$ で斜めにこれを横切る2本1組の互いに平行な軌道4、4'、および該軌道にて両端を滑動し得るように支えられた経方向に平行なトラバース具5を設け、軌道に沿って往復せしめる。トラバース具5にはコンベアのピンのピッチと同じピッチで同方向1列に、細管からなる多数のガイド6を配設し、多数本の樹脂被覆強化繊維束7をガイド6を経てコンベア3上に供給する。コンベア3のピンが被覆繊維束と同本数進行することにトラバース具5を1往復せしめて、その方向転換時に各繊維束をそれぞれ左右のピン1、1'に引っ掛けるようにし

て、左右のピン列2、2'間に多数本の被覆繊維束の斜交体8を形成せしめるものである。この場合、角度 $\alpha$ とコンベア3およびトラバース具5の速度を調節することにより図1における角度 $\beta$ を直角にすることができる。

【0012】更に、コンベア3上に軌道4、4'と同様な軌道9、9'を経方向に対し角度 $180^\circ - \alpha$ となるように設定し、糸ガイド11を有するトラバース具10を軌道9、9'間を滑動往復できるようにし、多数本の被覆繊維束12をガイド11を経て供給し、ピン列2、2'間に同様の斜交体を形成せしめる。2つの斜交体を重ねることにより緯材と2方向に交差する斜交材との組合せ体13が形成される。図2は図1の側面図であるが、図1に経材14、15が追加されている。図1にて形成された組合せ体13を上下から挟み込むように熱可塑性樹脂被覆繊維束からなる経材14、15が供給され、熱ローラ16の所で経材14、15に挟まれた状態で組合せ体13はピンから外され、熱ローラに密着した状態で加熱されプレスローラ17を通る時に各材の交点において、被覆熱可塑性樹脂が圧着され、経方向、緯方向及び互いに斜交する斜め2方向に被覆繊維束が配されたシート状の4軸組布18が形成される。

【0013】組合せ体13を熱ローラで加熱し、プレスローラで圧着する条件は、熱可塑性樹脂の種類やその他の条件により異なり、加熱条件や圧力が大きすぎると、この段階で被覆樹脂が繊維束中に含浸してしまい、出来上がった4軸組布は剛性が大きく、後工程での取扱いが悪くなる。従って、交点での熱融着が起こる程度の条件が望ましい。図2においては、経材が組合せ体13の上下から供給されるようになっているが、場合によっては下方からの経材14のみでも組合せ体13を熱ローラに密着可能であるため、経材が片面だけの4軸組布も可能である。本願発明の4軸組布において、斜交材の経材に対する角度は、強度の均一性の点からすると $45^\circ \pm 3^\circ$ が望ましいが、用途によっては、 $20^\circ \sim 70^\circ$ の範囲でも使用可能である。また互いに逆交差する斜交材の経材に対する角度は対称の関係にあることが望ましい本発明の複合材用強化繊維基材は、強化繊維の連続繊維が経方向、緯方向、斜め方向の4方向に配位されているため繊維強化複合材の強化材として用いた場合、強度の方向性の少ない複合材が得られる。また、各方向の強化繊維が織物と異なり直線状に配置されているため、補強材としての強度メンバーの効果を十分に発揮できる。本発明の複合材用強化繊維基材の製造は、前記したような方法に限らず、熱可塑性樹脂被覆繊維束による3軸組布を作成しておき、これに緯材または経材を積層融着させる方法によっても製造することができる。

【0014】更に本発明の4軸組布は、各材が熱可塑性樹脂により被覆されているため、繊維強化複合材を成形する場合に、マトリックス樹脂として新たに樹脂を使用する必要がなく、4軸組布のみで成形することができ

る。また、強化繊維束の周囲が熱可塑性樹脂で被覆されているため、成形時の熔融樹脂の含浸がほぼ均一に行われ、強化繊維の織物の場合に見られる交点部分での含浸不良も発生しにくい。更に、各材が交点において単に積層融着しているだけのため、成形時の繊維のずれに対する自由度が大きく、複雑な形状の場合でも良好な賦形性を有する。また、本発明の4軸組布は、製織工程を必要としないため、生産速度を上げることができ加工コストの低廉化をはかることもできる。本発明の複合材用強化繊維基材を成形材料として複合材を成形する場合、所定の厚みになるように基材を積層し、加熱加圧して成形する。成形温度は結晶性樹脂の場合は融点以上、好ましくは融点 $+30^\circ\text{C}$ 以上の温度条件が好ましい。非晶性樹脂の場合は、 $T_g$ 点 $+(50^\circ\text{C} \sim 300^\circ\text{C})$ の範囲、好ましくは $T_g$ 点 $+(100^\circ\text{C} \sim 200^\circ\text{C})$ の範囲の温度条件が良い。圧力は $5 \sim 50 \text{ kg/cm}^2$ 、好ましくは $10 \sim 20 \text{ kg/cm}^2$ の範囲が良い。

【0015】

【実施例】

<実施例1>経材、緯材、斜交材に $570 \text{ tex}$ のガラスロービングにポリアミド樹脂を被覆し $840 \text{ tex}$ としたものをを用いた。【日東紡績(株)製; RS57PR481,  $\text{tex}$ 番手  $570 \text{ tex}$ , フィラメント径  $14 \mu\text{m}$ ] 図1、図2に示す装置により一本おきに上下に配置された経材の間に緯材、斜交材を挟み込み、熱プレスローラを通すことにより、経材、緯材、斜交材の交点においてポリアミド樹脂が熱融着し、各材間を接着し、複合材用強化繊維基材が得られた。得られた複合材用強化繊維基材の質量は $563 \text{ g/m}^2$ で、各材の配列本数は経方向が20本/ $10 \text{ cm}$ 、緯方向が19本/ $10 \text{ cm}$ 、斜方向が両方向とも14本/ $10 \text{ cm}$ であった。得られた基材を5枚積層し、 $270^\circ\text{C}$ の温度で加温し、 $15 \text{ kg/cm}^2$ の圧力で成形した。その時の板厚みは2mmであった。

【0016】<実施例2>実施例1における各材の配列本数を経方向が9本/ $10 \text{ cm}$ 、緯方向が9本/ $10 \text{ cm}$ 、斜方向が両方向とも8本/ $10 \text{ cm}$ とした以外は実施例1と同様に行った。得られた複合材用強化繊維基材の質量は $285 \text{ g/m}^2$ であった。得られた基材を10枚積層し、実施例1と同じ条件で成形し、厚さ2mmの積層板を作成した。

【0017】<比較例1>ガラスクロス WEA7628 [日東紡績(株)製; 質量 $209 \text{ g/m}^2$ ] を13枚積層し、ガラスクロスの間の層間にポリアミド樹脂フィルム $80 \mu\text{m}$ を挿入し、実施例と同一条件で成形し厚さ2mmの積層板を得た。

【0018】<積層板の強度>実施例、比較例のそれぞれの積層板について曲げ強さ、曲げ弾性率を測定した。結果を表1に示す。測定法はASTM D790による。

【0019】

【表1】

		UNIT	実施例 1	実施例 2	比較例 1
0°	曲げ強さ	kg/mm <sup>2</sup>	41	43	58
	曲げ弾性率	〃	1560	1550	1740
45°	曲げ強さ	〃	42	44	35
	曲げ弾性率	〃	1540	1540	1380
90°	曲げ強さ		43	42	56
	曲げ弾性率	〃	1560	1550	1720

【0020】＜積層板の賦形性＞実施例1の積層板と比較例1の積層板について、予熱して半球状の型に入れ熱プレスを行い、半球状（半径15cm）の成形品を作成し、強化材の状態を観察した。実施例1の積層板からの成形品は、成形品にしわが入らず、強化材の4軸組布も経材、緯材、斜交材の部分的なずれや裂けが見られず良好な状態であった。これに対し、比較例1からの積層板による成型品は、部分的にしわが入り、強化材の織物も経系、緯系がずれて部分的に経系だけ、または緯系だけの部分が見られた。これは織物の場合は、経方向と緯方向には伸びることができず、斜方向にのみ変形可能であるのに対し、本発明の複合材用強化繊維基材の場合は、各材が単に積層されているだけのため各方向に自由にずれることができるためと推定される。

【0021】

【発明の効果】本発明の複合材用強化繊維基材は、連続強化繊維が経、緯、斜め2方向に直線状に配置されているため、複合材の強化材として用いた場合、強度の方向による差の少ない、補強効果の良好な複合材が得られる。また、本発明の複合材用強化繊維基材は、各材を構成する強化繊維束の周囲を熱可塑性樹脂が被覆しているため、この被覆樹脂をマトリックスとすることにより良好な樹脂含浸性が得られ、複合材の強化繊維の含有率を

高くすることもできる。この点からも機械的特性の優れた複合材を可能とする。更に、本発明の複合材用強化繊維基材は、柔軟性を有し、賦形性も良好なため複雑な形状の成形体にも適用することができる。

【図面の簡単な説明】

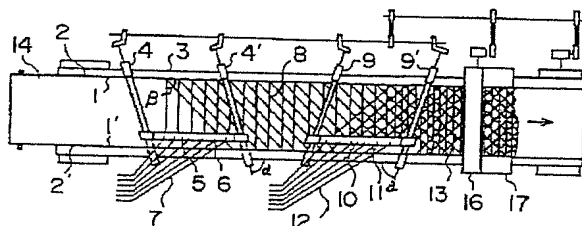
【図1】本発明の複合材用強化繊維基材を製造するための装置の平面図

【図2】本発明の複合材用強化繊維基材を製造するための装置の側面図

【符号の説明】

- 1, 1' 被覆繊維束を掛けるためのピン
- 2, 2' ピン列
- 3 循環コンベア
- 4, 9 トラバース軌道
- 5, 10 トラバース具
- 6, 11 ガイド
- 7, 12 緯材及び斜交材用の樹脂被覆繊維束
- 8, 13 斜交体
- 14, 15 経材
- 16 加熱ローラ
- 17 プレスローラ
- 18 複合材用強化繊維基材

【図1】



【図2】

